

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001年9月7日 (07.09.2001)

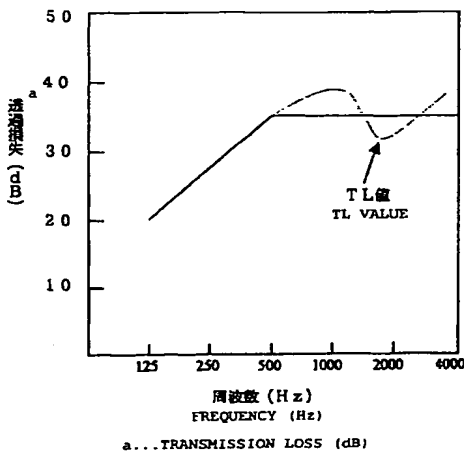
PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/64598 A1

- (51) 国際特許分類: C03C 27/12, C08L 29/14, C08K 5/103
- (21) 国際出願番号: PCT/JP01/01620
- (22) 国際出願日: 2001年3月2日 (02.03.2001)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願2000-57419 2000年3月2日 (02.03.2000) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 積水化学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒530-8565 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 遠山清文 (TOYAMA, Kiyofumi) [JP/JP]. 青島嘉男 (AOSHIMA, Yoshio) [JP/JP]. 清水慎郎 (SHIMIZU, Chikao) [JP/JP]; 〒528-8585 滋賀県甲賀郡水口町泉1259 積水化学工業株式会社内 Shiga (JP).
- (74) 代理人: 安富康男 (YASUTOMI, Yasuo); 〒532-0011 大阪府大阪市淀川区西中島5丁目4番20号 中央ビル Osaka (JP).
- (81) 指定国 (国内): AU, BR, CA, KR, MX, SG, US, ZA.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書  
— 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正書受領の際には再公開される。
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: INTERLAYER FILM FOR LAMINATED GLASS AND LAMINATED GLASS

(54) 発明の名称: 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス



(57) Abstract: An interlayer film for laminated glasses which prevents a decrease in TL value by lessening a coincidence effect and is highly effective in sound insulation in a wide temperature range. The interlayer film comprises: a polyacetal resin blend which comprises a polyacetal resin having an average degree of polymerization of 1,000 to 3,000 and a polyacetal resin having an average degree of polymerization of 3,000 to 5,000 and which has a degree of acetalization of 60 to 85 mol% and an acetyl group content of 8 to 30 mol%; and a plasticizer. The interlayer film, when examined for dynamic viscoelasticity, gives a temperature dependence of loss tangent in which the lowest-temperature side maximum of loss tangent appears at 30°C or lower.

WO 01/64598 A1



---

(57) 要約:

コインシデンス効果の緩和によってTL値の低下を防ぎ、広い温度領域において優れた遮音性能を発揮する合わせガラス用中間膜、合わせガラスを提供する。

平均重合度が1000～3000のポリアセタール樹脂と平均重合度が3000～5000のポリアセタール樹脂を混合してなるアセタール化度が60～85mol%、アセチル基量が8～30mol%のポリアセタール樹脂と可塑剤からなるガラス用中間膜。

動的粘弾性より得られる損失正接の温度依存性において、最も低温側の極大値が示す温度が30℃以下のガラス用中間膜。

## 明細書

## 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

## 技術分野

- 5 本発明は、耐湿性能、高温下での耐板ズレ性と耐発泡性、取扱性能に優れ、しかも優れた遮音性能を有し、更には遮熱性、電磁波透過性に優れた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスに関する。

## 背景技術

- 10 一般に、一对のガラス板間に中間膜が挟着されてなる合わせガラスは、破損時に破片が飛散せず安全性に優れているため、例えば自動車等の交通車両の窓ガラスや建築物の窓ガラス等に広く用いられている。

- こうした合わせガラス用の中間膜のうち、可塑剤の添加により可塑化されたポリビニルブチラール樹脂からなる中間膜は、ガラスとの優れた接着性、強靱な引  
15 っぱり強度及び高い透明性を兼ね備えており、この中間膜を用いて得られる合わせガラスは、特に、車両用窓ガラスとして好適である。

- 一般に、遮音性能は、周波数の変化に応じた透過損失量として示され、その透過損失量は、JIS A 4708では、図1中に実線で示すように、500Hz  
20 以上において遮音等級に応じてそれぞれ一定値で規定されている。ところで、ガラス板の遮音性は、図1中に波線で示すように、2000Hzを中心とする周波数領域ではコインシデンス効果により著しく低下する。

図1中の波線の谷部がコインシデンス効果による遮音性能の低下に相当し、所定の遮音性能を保持しないことを示す。

- ここで、コインシデンス効果とは、ガラス板に音波が入射したとき、ガラス板  
25 の剛性と慣性によってガラス面上を横波が伝播して横波と入射音とが共鳴し、その結果音の透過が起こる現象をいう。

従来の合わせガラスは、破片の飛散防止の面では優れているものの、遮音性の面では、2000Hzを中心とする周波数領域において、やはりコインシデンス効果による遮音性能の低下が避けられず、この点の改善が求められている。

一方、人間の聴覚は、等ラウドネス曲線から、1000～6000Hzの範囲では他の周波数に比べ非常に高い感度を示すことが知られており、コインシデンス効果による遮音性能の落ち込みを解消することが防音性にとって極めて重要であることが判る。

- 5 合わせガラスの遮音性能を向上するには上記のごときコインシデンス効果を緩和して、コインシデンス効果によって生じる透過損失の極小部（以下、この極小部の透過損失をTL値という。図1参照）の低下を防ぐ必要がある。

従来TL値の低下を防ぐ手段として、合わせガラスの質量の増大、ガラスの複層化、ガラス面積の細分化、ガラス板支持手段の改善等、種々の方策が提案され  
10 ている。しかし、これらはいずれも十分に満足できる効果をもたらさない上に、コスト的にも実用に採用するに妥当な価格になっていない。

遮音性能に対する要求は最近ますます高まり、例えば建築用窓ガラスでは常温付近で優れた遮音性が要求される。即ち、温度に対して透過損失（TL値）をプロットして求めた遮音性能が最も優れている温度（遮音性能最大温度＝TLmax温度）が常温付近であり、かつ、遮音性能の最大値（遮音性能最大値＝TLmax値）自体が大きいという、優れた遮音性能が要求されている。自動車においても同様に、高速走行時の風切り音及びエンジン部からの振動等、遮音性が要求されつつある箇所は多くなってきている。

また、実際に使用される場合を考慮すると、これら合わせガラスは低温域から  
20 高温域までの幅広い環境温度の変化にさらされるので、室温付近のみならず広い温度範囲での良好な遮音性能が要求される。

しかし、例えば従来の可塑化ポリビニルブチラール樹脂からなる中間膜を用いた合わせガラスでは、遮音性能最大温度が室温より高く、常温付近では遮音性能がよくないという問題点があった。

- 25 また、遮音性能を発揮させようとする、中間膜の膜物性が柔らかくなり、合わせガラスにした際に板ずれ、発泡が生じるという問題があった。

合わせガラスの遮音性能の向上を企図した中間膜の先行技術として、特開平2-229742号公報には、ガラス転移温度15℃以下の高分子膜、例えば、塩化ビニル-エチレン-グリシジルメタクリレート共重合体膜と可塑化ポリビニル

アセタール膜との積層体からなる中間膜が開示されている。

しかしこの中間膜は、JIS A 4706による遮音等級でTs-35等級を超える遮音性を示さないうえに、遮音性を示す温度範囲が限定されており、広い温度範囲で良好な遮音性能を発揮できない。

5 また、すでに、アセタール化度が60~85mol%、アセチル基量が8~30mol%で、かつ、これらアセタール化度とアセチル基量との合計が75mol%以上であるポリビニルアセタール樹脂と、その樹脂との曇り点が50℃以下を示す可塑剤とからなる合わせガラス用中間膜が提案されている。この中間膜では、確かに遮音性能と温度変化による性能の変動とは改善されているが、膜物性が柔らかいため、合わせガラスにした際の板ずれ、発泡が起こるといった問題点を有していた。

15 特開昭51-106190号公報には、ガラス転移温度の異なる2種以上の樹脂を積層することによって、広い温度領域で制振性を有する構成体を得ることが提案されている。この構成体では、広い温度領域で制振性が改善されることが記載されている。しかし、この構成体が合わせガラスとして必要な遮音性、透明性等を有するという記述はなく、また、この構成体は安全ガラスとして必要な高い衝撃エネルギー吸収性、ガラス破損時の飛散防止性等の要件を満たすものではない。

20 特開平4-254444号公報には、アセタール基の炭素数が6~10であるポリビニルアセタールと可塑剤からなる膜と、アセタール基の炭素数が1~4であるポリビニルアセタールと可塑剤からなる膜を積層した中間膜が提案されている。この中間膜では、確かに遮音性能の改善効果は認められ、かつ温度変化による遮音性能は大きく変動しないが、これらの効果は未だ充分ではない。

25 このように上記先行技術の中間膜は、適度な膜物性を有し、かつ、広い温度領域で優れた遮音性能を発揮する合わせガラスを構成できるものではなかった。

#### 発明の要約

本発明は、上記に鑑み、透明性、耐候性、衝撃エネルギー吸収性、ガラスとの接着性等の合わせガラスに必要な基本性能を損なうことなく、また中間膜の成形

性及び取扱性を損なうこともなく、コインシデンス効果の緩和によってTL値の低下を防ぎ、かつ広い温度領域において優れた遮音性能を長期安定的に発揮し、適度な膜物性により合わせガラスとしたときの板ずれ、発泡を防止することができる合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを提供することを目的とする。

- 5 第1の本発明は、ポリビニルアセタール樹脂(A)及びポリビニルアセタール樹脂(B)が混合されてなるポリビニルアセタール樹脂(C)、並びに、可塑剤からなる合わせガラス用中間膜であって、ポリビニルアセタール樹脂(A)は、平均重合度が1000~3000であり、ポリビニルアセタール樹脂(B)は、平均重合度が3000~5000であり、ポリビニルアセタール樹脂(A)とポリビニルアセタール樹脂(B)との平均重合度差は、1500以上であり、ポリビニルアセタール樹脂(C)は、アセタール化度が60~85mol%、アセチル基量が8~30mol%、かつ、アセタール化度とアセチル基量との合計が75mol%以上であり、可塑剤100重量部にポリビニルアセタール樹脂(C)8重量部を溶解させた溶液の曇り点は、50℃以下である合わせガラス用中間膜である。

- 15 第2の本発明は、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、トリエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエートからなる群より選ばれる少なくとも1種の可塑剤によって可塑化されたポリビニルアセタール樹脂からなる膜を積層してなる合わせガラス用中間膜であって、動的粘弾性より得られる損失正接の温度依存性において、最も低温側の極大値が示す温度が30℃以下である合わせガラス用中間膜である。

第2の本発明は、少なくとも1層は、可塑剤100重量部にポリビニルアセタール樹脂8重量部を溶解させた溶液の曇り点が50℃以下であることが好ましい。

- 25 第2の本発明は、少なくとも1層は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する可塑剤量が、他層よりも5重量部以上多いことが好ましい。

第2の本発明は、少なくとも1層は、ポリビニルアセタール樹脂が、平均重合度が1500以上であり、アセタール化度が60~85mol%、アセチル基量が8~30mol%、かつ、アセタール化度とアセチル基量との合計が75mol%

1%以上であることが好ましい。

第2の本発明は、少なくとも1層は、ポリビニルアルコール樹脂(A)及びポリビニルアルコール樹脂(B)が混合されてなるポリビニルアルコール樹脂より得られるポリビニルアセタール樹脂(C)、並びに、可塑剤からなり、ポリビニルアルコール樹脂(A)とポリビニルアルコール樹脂(B)との平均重合度差は500以上であり、ポリビニルアセタール樹脂(C)は、アセタール化度が60~85mol%、アセチル基量が8~30mol%、かつ、アセタール化度とアセチル基量との合計が75mol%以上であるか、又は、少なくとも1層が、ポリビニルアセタール樹脂(D)及びポリビニルアセタール樹脂(E)が混合されてなるポリビニルアセタール樹脂(F)、並びに、可塑剤からなり、ポリビニルアセタール樹脂(D)とポリビニルアセタール樹脂(E)との平均重合度差は500以上であり、ポリビニルアセタール樹脂(F)は、アセタール化度が60~85mol%、アセチル基量が8~30mol%、かつ、アセタール化度とアセチル基量との合計が75mol%以上であることが好ましい。このとき、ポリビニルアルコール樹脂(A)の平均重合度が500~3000であり、ポリビニルアルコール樹脂(B)の平均重合度が3000~5000であること、又は、ポリビニルアセタール樹脂(D)の平均重合度が500~3000であり、ポリビニルアセタール樹脂(E)の平均重合度が3000~5000であることがより好ましい。

第2の本発明は、少なくとも1層は、ポリビニルアセタール樹脂が熱線カット機能を有する金属酸化物微粒子を含有していることが好ましい。

第1及び第2の本発明は、更に、ポリエステルフィルムが積層されてなることが好ましい。

第1及び第2の本発明において、ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルブチラール樹脂であることが好ましい。

少なくとも一対のガラス間に第1及び第2の本発明の合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させてなる合わせガラスもまた、本発明の1つである。

図1は、合わせガラスの遮音性能を、周波数に対する透過損失量として示す図である。

#### 発明の詳細な開示

- 5 第1の本発明の合わせガラス用中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂(A)及びポリビニルアセタール樹脂(B)が混合されてなるポリビニルアセタール樹脂(C)、並びに、可塑剤からなる合わせガラス用中間膜である。

第1の本発明で用いられるポリビニルアセタール樹脂(A)及び(B)は、例えば、ポリビニルアルコール(PVA)を熱水に溶解し、得られた水溶液を所定  
10 温度に保持した後、これにアルデヒドと触媒とを加えアセタール化反応を進行させ、その後、反応液を所定温度で高温保持した後に中和、水洗、乾燥の諸行程を経て樹脂粉末を得る方法等により得られる。

上記PVAとしては特に限定されないが、平均重合度500~5000のものが好ましい。500未満であると、得られる合わせガラス用中間膜の強度が弱くなりすぎて、合わせガラスとしたときの耐貫通性や衝撃エネルギー吸収性が不  
15 充分となることがある。一方、5000を超えると、樹脂の成形が困難となることがあり、また、得られる合わせガラス用中間膜の強度が強くなりすぎて、合わせガラスとしたときの耐貫通性や衝撃エネルギー吸収性が不十分となることがある。より好ましくは、1000~5000である。

20 上記アルデヒドとしては特に限定されず、例えば、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、 $n$ -ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、バレルアルデヒド、 $n$ -ヘキシルアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド、ベンズアルデヒド、シンナムアルデヒド等が挙げられる。これらは単独で用いられてもよく、2種類以上が併用されてもよい。

25 こうして得られる各種ポリビニルアセタール樹脂は、単独で用いられてもよく、2種類以上が併用されてもよいが、なかでも $n$ -ブチルアルデヒドでアセタール化して得られるポリビニルブチラール樹脂が好ましい。ポリビニルブチラール樹脂を用いることにより、得られる合わせガラス用中間膜の透明性、耐候性、ガラスに対する接着性等が優れたものとなる。



第1の本発明で用いられるポリビニルアセタール樹脂(A)は、平均重合度が1000~3000であり、ポリビニルアセタール樹脂(B)は、平均重合度が3000~5000であり、ポリビニルアセタール樹脂(A)とポリビニルアセタール樹脂(B)との平均重合度差は、1500以上である。

- 5 平均重合度が1000~3000のポリビニルアセタール樹脂(A)を用いることにより、得られる合わせガラス用中間膜の遮音性能は、広い温度範囲において、特に、低温域で良好になるが、膜物性は柔らかくなるので、合わせガラスにした際に板ずれ、発泡等が発生する。一方、平均重合度が3000~5000のポリビニルアセタール樹脂(B)を用いると、得られる合わせガラス用中間膜の
- 10 膜物性は硬くなり、合わせガラスにした際の板ずれ、発泡の防止効果は現れるが、高温での粘性が高くなりすぎるので、樹脂の成形性が悪くなる。そのため、上記ポリビニルアセタール樹脂(A)とポリビニルアセタール樹脂(B)との平均重合度差は、1500以上とされる。

- ポリビニルアセタール樹脂(A)とポリビニルアセタール樹脂(B)との平均
- 15 重合度差が1500以上になるような組み合わせで混合されたポリビニルアセタール樹脂(C)を用いることにより、得られる合わせガラス用中間膜は、広い温度領域において優れた遮音性能を有するものとなり、かつ、適度な膜物性を有するので合わせガラスとしたときの板ずれ、発泡等を防止することができる。平均重合度差が1500未満では、得られる合わせガラス用中間膜が、良好な膜物性を有さない。
- 20

- 上記ポリビニルアセタール樹脂(A)とポリビニルアセタール樹脂(B)とを混合する方法としては、例えば、平均重合度の異なるポリビニルアルコール(PVA)を所定量混合した後、アセタール化反応を行い混合ポリビニルアセタール樹脂を得る方法、平均重合度の異なる各PVAより得られた各ポリビニルアセ
- 25 ーラ樹脂を所定量混合する方法等が挙げられる。

第1の本発明で用いられるポリビニルアセタール樹脂(C)は、アセタール化度が60~85mol%、アセチル基量が8~30mol%、かつ、アセタール化度とアセチル基量との合計が75mol%以上である。

ポリビニルアセタール樹脂は、ビニルアセタール成分とビニルアルコール成分

とから構成されている。第1の本発明において、これら成分量（アセタール化度、アセチル基量）は、例えば、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」や、赤外線吸収スペクトル（IR）に基づいて測定することができる。

上記アセタール化度が60m o 1%未満であると、樹脂と後述する可塑剤との相溶性が悪くなり、遮音性能を発揮したり、合わせガラスの耐貫通性確保に必要な量の可塑剤の添加が困難となる。アセタール化度が85m o 1%を超える樹脂を得るには、長時間の反応が必要となるので、プロセス上好ましくない。好ましくは、63~70m o 1%である。

上記アセチル基量が8m o 1%未満であると、樹脂と後述する可塑剤との相溶性が悪くなり、また、得られる樹脂のガラス転移温度が十分に低下せず、低温側における遮音性能が十分に向上しない。アセチル基量が30m o 1%を超えるポリビニルアセタール樹脂を得ようとする、上述したPVAとアルデヒドとの反応性が著しく低下するので好ましくない。好ましくは、10~24m o 1%である。

上記アセタール化度とアセチル基量との合計が75m o 1%未満であると、樹脂と後述する可塑剤との相溶性が不十分となる。好ましくは、77m o 1%以上である。

上記可塑剤としては特に限定されず、例えば、一塩基酸エステル系、多塩基酸エステル系等の有機エステル系可塑剤；有機リン酸系、有機亜リン酸系等のリン酸系可塑剤等が挙げられる。

上記一塩基酸エステル系可塑剤としては特に限定されず、例えば、トリエチレングリコール、トリプロピレングリコール、テトラエチレングリコール等のグリコールと酪酸、イソ酪酸、カプロン酸、2-エチル酪酸、ヘプタン酸、2-エチルヘキシル酸等の有機酸との反応によって得られるグリコール系エステル等が挙げられる。

上記多塩基酸エステル系可塑剤としては特に限定されず、例えば、炭素数4~8の直鎖状又は分岐状アルコールとアジピン酸、セバチン酸、アゼライト酸等の有機酸との反応によって得られるエステル等が挙げられる。

上記リン酸系可塑剤としては特に限定されず、例えば、トリブトキシエチルフ

オスフェート、イソデシルフェニルフォスフェート等が挙げられる。

上記各種可塑剤の中でも、例えば、トリエチレングリコールジ2-エチルブチレート (3GH)、トリエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエート (3GO)、トリエチレングリコールジ $n$ -ヘプタノエート (3G7)、トリエチレングリコールジカプリレート、トリエチレングリコールジ $n$ -オクタノエート、テトラエチレングリコールジ2-エチルブチレート、テトラエチレングリコールジ $n$ -ヘプタノエート、ジヘキシルアジペート、ジベンジルフタレート等が好ましく、より好ましくは、3GH、3GO、3G7等である。上記可塑剤は単独で用いられてもよく、2種類以上が併用されてもよい。

10 第1の本発明の合わせガラス用中間膜において、ポリビニルアセタール樹脂 (C) と可塑剤との組み合わせとしては、ポリビニルアセタール樹脂 (C) としてポリビニルブチラール樹脂を用い、可塑剤として3GH、3GO及び3G7からなる群より選択される少なくとも1種を用いる組み合わせが好ましい。

15 上記ポリビニルアセタール樹脂 (C) に対する可塑剤の添加量としては特に限定されないが、ポリビニルアセタール樹脂 (C) 100重量部に対して、可塑剤30~70重量部であることが好ましい。30重量部未満であると、ポリビニルアセタール樹脂の可塑化が不十分となることがある。70重量部を超えると、得られる合わせガラス用中間膜の機械的強度が低減するので耐衝撃性が劣り、合わせガラス用中間膜とガラスとの接着力が不十分となることがある。

20 第1の本発明の合わせガラス用中間膜は、可塑剤100重量部にポリビニルアセタール樹脂 (C) 8重量部を溶解した溶液の曇り点が、50℃以下である。50℃を超えると、樹脂と可塑剤との相溶性が悪いので、遮音性能を発揮したり、合わせガラスの耐貫通性確保に必要な量の可塑剤の添加が困難となる。好ましくは、30℃以下である。

25 なお、第1の本発明において、曇り点とは、JIS K 2269「原油及び石油製品の流動点並びに石油製品曇り点試験方法」に準拠して測定される曇り点であり、具体的には、可塑剤100重量部に対しポリビニルアセタール樹脂8重量部を溶解して得られる溶液を150℃以上に加熱した後、10~30℃の雰囲気下に放置して温度を降下させたときに、この溶液の一部に曇りが発生し始める

温度を意味する。ここで、曇り点が低いほど、その樹脂と可塑剤との相溶性が大きいことを表す。

上記溶液の一部に曇りが発生し始める温度（曇り点）の測定方法としては、例えば、溶液の外観を目視で観察する方法、溶液のヘーズをヘーズメーターで測定  
5 する方法、あらかじめ曇りに関する複数段階の限度見本を作製しておき、この限度見本と対照して曇りを判定する方法等が挙げられる。

第2の本発明の合わせガラス用中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂、及び、  
トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、テトラエチレングリ  
10 コールジ-2-エチルヘキサノエート、トリエチレングリコールジ-n-ヘプタ  
ノエート、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエートからなる群より選ば  
れる少なくとも1種の可塑剤からなる膜を積層してなるものである。

第2の本発明では、遮音性能を広温度範囲にて良好にするため、複数枚の樹脂  
膜を積層させることが好ましい。積層させることにより、各膜の遮音性能の温度  
依存性が重なり、積層膜が示す遮音性能は広温度範囲にて良好になる。

15 例えば、積層膜によって、より低温側の遮音性能を確保するためには、一つの  
単層の遮音性能を低音側にシフトさせる手段がとられる。具体的には可塑剤添加  
部数を増やし層のガラス転移温度をより低温に下げる。この場合、低温側の遮音  
性能は良好になるが、逆に膜が軟らかくなるので、中間膜としての力学的特性、  
取扱性及び成形性が損なわれ、合わせガラスの耐衝撃性等が著しく低下する恐れ  
20 がある。また、合わせガラスを垂直状態にし、一方の板ガラスを垂直状態に自由  
に動けるよう保持しておく、積層膜中の軟らかい層部でガラス板が垂直方向に  
ずれる恐れが強い。この現象は特に高温下で顕著に生じる可能性がある。あるい  
は、合わせガラスを100℃以上で2時間程度放置するベーク試験において、膜  
内で発泡が生じやすくなる。

25 そこで、更に、第2の本発明では、各単層で設計した遮音性能の温度依存性が、  
積層することによって変化することなく、かつ高温下でのガラス板のずれが生じ  
ないよう、鋭意検討を続けた。

また、自動車に合わせガラスが使用される最近の動向では、例えばサイドガラ  
ス部の合わせガラス化、及び、フロントガラスのエッジ部暴露型が流行りとなっ

てきている。これらの場合、合わせガラスのエッジ断面が直接人の目につくことになる。

合わせガラスは高湿度下に曝されると、膜が白くなる吸湿劣化（吸湿白化）が生じる。即ち、エッジ断面が暴露される場合で、この吸湿白化が生じると、美観  
5 上大きな問題を起す。従い、吸湿による白化を抑える、耐湿性能の向上も遮音性を有する膜には必要不可欠な条件となる。

これらのことを念頭に、鋭意検討を行った結果、樹脂膜を形成する樹脂の構造、可塑剤の相溶性、を制御することにより、上記問題点が解決できる知見を得た。

第2の本発明で用いられるポリビニルアセタール樹脂としては特に限定されず、  
10 第1の本発明で用いられるものと同様であるが、なかでも、ブチルアルデヒドを加えてアセタール化反応させるポリビニルブチラール樹脂が、樹脂膜の透明性、耐候性、ガラスに対する接着性等がより優れるので好ましい。

第2の本発明で用いられる可塑剤は、上述のとおり、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（3G0）、テトラエチレングリコールジ-2-  
15 エチルヘキサノエート（4G0）、トリエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート（3G7）、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート（4G7）に限定される。これら以外の可塑剤を用いると、遮音性能と両立させるためには、試験条件によっては、耐熱性、耐湿性に通常用途では観られなかった不具合が生じる場合もある。上記可塑剤は、単独で用いられてもよく、2種類以上が併用さ  
20 れてもよい。

上記可塑剤の添加量は特に限定されないが、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対し、可塑剤30~70重量部であることが好ましい。30重量部未満であると、ポリビニルアセタール樹脂の可塑化が不十分となることがあり、また、遮音性能も不十分となることが多い。一方、70重量部を超えると、樹脂層及び  
25 中間膜の力学物性やガラスに対する接着力が不十分となることがある。

第2の本発明の合わせガラス用中間膜は、動的粘弾性より得られる損失正接の温度依存性において、最も低温側の極大値が示す温度が30℃以下である。

一般に、高分子材料の動的粘弾性測定を行うと、貯蔵弾性率及び損失弾性率の2種類の動的弾性率と、それらの比として損失正接（ $\tan \delta$ ）が得られる。例

えば、この測定を温度を変化させながら行った場合、損失正接はある温度で最大値を示す。一般に、この最大値を示す温度は、その材料のガラス転移温度 ( $T_g$ )、すなわち軟化温度に相当する。

可塑化されたポリビニルアセタール樹脂膜の  $T_g$  が室温付近であると、その樹脂膜を用いた合わせガラスの室温付近における遮音性能は極めて優れる。しかし、室温付近に  $T_g$  があると、柔軟性が高くなりすぎ、合わせガラスを作製する上で取り扱い性が悪く、また、それを用いた合わせガラスの耐衝撃性が劣る恐れがある。このため、第2の本発明では柔軟な樹脂膜と比較的強靱な樹脂膜とを積層させて、遮音性能と取り扱い性を含む強度との両立を図っている。ところが、積層体の状態で、個々の層の  $T_g$  を測定することは非常に困難であった。積層する前の各層の  $T_g$  を測定すればよいが、ある種の樹脂、可塑剤の組み合わせでは、各層を積層後、層間で可塑剤の移行が生じ、始めに測定した各層の  $T_g$  は意味をなさないことがある。

ところが、せん断方法による動的粘弾性の測定を行うと、積層体における各層の  $\tan \delta$  挙動が現れ、この挙動から各層の  $T_g$  が見積もれることが判った。

第2の本発明の合わせガラス用中間膜の最も低温側の極大値を示す温度は、積層体中最も柔らかい層の存在を意味し、この温度が  $30^\circ\text{C}$  以下であれば、その積層体を用いた合わせガラスの遮音性能は極めて優れる。  $30^\circ\text{C}$  を超えると、その積層体は室温付近で十分な柔軟性を示すことがなく、従ってその積層体を用いた合わせガラスは、室温付近で優れた遮音性能を示すことがない。

せん断方法による動的粘弾性の測定は、一般的に用いられる動的粘弾性測定装置を用いて行うことができ、その原理は微小振動を有する歪みを試料に印加し、その応答である応力を検出し、弾性率を算出するものである。得られた損失弾性率及び貯蔵弾性率の2種類の弾性率から、その比として損失正接 ( $\tan \delta$ ) を求める。  $\tan \delta$  は温度に対して最大値を示す。この  $\tan \delta$  の最大値が示す温度を、その材料のガラス転移温度とする。

微小振動の歪みを印加する方法としては特に限定されないが、例えば、引張方法では、積層体の各層の  $\tan \delta$  挙動を測定することができないので、せん断方法が好ましい。

微小振動の歪みの周波数は特に限定されないが、測定のしやすさと測定値の精度から、10 Hz が好適に用いられる。

第2の本発明の合わせガラス用中間膜は、少なくとも1層が、可塑剤とポリビニルアセタール樹脂との混合溶液の曇り点が50℃以下であることが好ましい。

5 なお、曇り点は、第1の本発明においてと同様の意味である。曇り点が50℃を超えると、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との相溶性が良好ではないので、層の遮音性能、特に低温域における遮音性能は向上しにくい。より好ましくは、30℃以下であり、更に好ましくは、20℃以下である。

第2の本発明の合わせガラス用中間膜は、少なくとも1層が、ポリビニルアセ  
10 タール樹脂100重量部に対する可塑剤量が、他層よりも5重量部以上多いこと  
が好ましい。5重量部以上多いことにより、積層体中に柔軟な層が形成され、損  
失正接の温度依存性を達成することができる。5重量部未満であると、積層体中  
の柔軟層形成に著しい効果が観られず、遮音性能が充分ではない。

第2の本発明の合わせガラス用中間膜は、少なくとも1層が、平均重合度15  
15 00以上、アセタール化度60～85mol%、アセチル基量8～30mol%、  
かつ、アセタール化度とアセチル基量との合計75mol%以上のポリビニルア  
セタール樹脂であることが好ましい。

なお、第2の本発明におけるポリビニルアセタール樹脂の各成分の測定方法は  
第1の本発明におけるものと同様である。

20 上記平均重合度が1500未満であると、遮音性能が充分でなく、また、機械  
的強度も不十分なために、合わせガラスとしての耐衝撃性が劣る。

上記アセタール化度が60mol%未満であると、可塑剤との相溶性が劣り、  
この層のガラス転移温度は下がらず、低温域の遮音性能は向上しない。一方、ア  
セタール化度は反応機構上、85mol%を超えることはできない。より好まし  
25 くは、63～70mol%である。

上記アセチル基量が8mol%未満であると、可塑剤との相溶性が劣り、層の  
遮音性能が充分に発揮されない。一方、30mol%を超えると、アルデヒドの  
反応率が著しく低下するので好ましくない。より好ましくは、10～24mol  
1%である。

上述のように、ポリビニルアセタール樹脂のアセタール化度及びアセチル基量の両方が、可塑剤との相溶性に影響する。これらの合計が75m o 1%未満であると、可塑剤との相溶性が劣り、低温部の遮音性能を向上させることができない。

第2の本発明の合わせガラス用中間膜は、少なくとも1層が、ポリビニルアルコール樹脂(A)及びポリビニルアルコール樹脂(B)が混合されてなるポリビニルアルコール樹脂より得られるポリビニルアセタール樹脂(C)、並びに、可塑剤からなり、ポリビニルアルコール樹脂(A)とポリビニルアルコール樹脂(B)との平均重合度差は500以上であり、ポリビニルアセタール樹脂(C)は、アセタール化度が60~85m o 1%、アセチル基量が8~30m o 1%、かつ、アセタール化度とアセチル基量との合計が75m o 1%以上であるか、又は、ポリビニルアセタール樹脂(D)及びポリビニルアセタール樹脂(E)が混合されてなるポリビニルアセタール樹脂(F)、並びに、可塑剤からなり、ポリビニルアセタール樹脂(D)とポリビニルアセタール樹脂(E)との平均重合度差は500以上であり、ポリビニルアセタール樹脂(F)は、アセタール化度が60~85m o 1%、アセチル基量が8~30m o 1%、かつ、アセタール化度とアセチル基量との合計が75m o 1%以上であることをが好ましい。

第2の本発明において、ポリビニルアルコール樹脂の平均重合度及び鹸化度は、例えば、JIS K 6726「ポリビニルアルコール試験方法」に基づいて測定することができる。

上記ポリビニルアセタール樹脂(C)は異なる平均重合度を有するポリビニルアルコール樹脂(A)及び(B)を混合させてなるポリビニルアルコール樹脂から得られ、ポリビニルアセタール樹脂(F)は異なる平均重合度を有するポリビニルアセタール樹脂(D)及び(E)を混合させて得られる。いずれも異なる平均重合度差は500以上である。

平均重合度の異なる樹脂を混合させることにより、良好な遮音性能の温度範囲が広がる。このことに加え、混合の際、平均重合度が高い方の樹脂を低い方の樹脂に数十%混合すると、重合度が低い樹脂のみから得られる膜よりも、機械的強度が向上する。重合度が低い樹脂膜の中に、重合度の高い樹脂膜が点在し、これが架橋点のような働きを示すために、高温下での流動性が高すぎることなく、



効率的に機械的強度が向上する。逆に、平均重合度が低い方の樹脂を、高い方の樹脂に数十%混合すると、重合度が高い樹脂のみから得られる膜の高温下での流動性が低下し、成形しやすくなる。重合度が低い樹脂が、可塑剤のような働きを示すからである。このため、平均重合度差が500未満であると、混合の効果が  
5  みられない。

第2の本発明において、ポリビニルアルコール樹脂(A)とポリビニルアセタール樹脂(D)との平均重合度が500~3000であり、ポリビニルアルコール樹脂(B)とポリビニルアセタール樹脂(E)との平均重合度が3000~5000であることが好ましい。

10  平均重合度が500~3000のポリビニルアルコール樹脂(A)又はポリビニルアセタール樹脂(D)を用いることにより、得られる樹脂層の機械的特性が良好になり、しかもそれを用いた合わせガラスの遮音性能が広い温度範囲にわたり良好となる。500未満であると、得られる膜の機械的強度が著しく低下し、合わせガラスとしての耐衝撃性が思わしくない。一方、3000を超えると、高  
15  温での流動性が高くなりすぎ、成形性が悪くなる。

平均重合度が3000~5000のポリビニルアルコール樹脂(B)又はポリビニルアセタール樹脂(E)と上記樹脂を混合することにより、たとえ低温側の遮音性能を確保すべく膜のガラス転移温度を低温に下げたとしても、その機械的強度は低下することがない。3000未満であると、混合による効果は全くない。  
20  一方、5000を超えると、樹脂自体の製造が困難となり好ましくない。

混合の際、ポリビニルアルコール樹脂(A)又はポリビニルアセタール樹脂(D)に対しポリビニルアルコール樹脂(B)又はポリビニルアセタール樹脂(E)を5~30重量%混合することが好ましい。5重量%未満であると、混合の効果はめざましくなく、30重量%を超えると、混合の効果がほぼ同じになる  
25  ため、多量混合の効果は見られない。

更に、遮音性よりもむしろ、中間膜としての力学物性等の取扱性を重視する層も設けることが好ましい。この層を形成するポリビニルアセタール樹脂としては特に限定されないが、アセタール化度は50mol%以上であることが好ましい。50mol%未満であると、可塑剤との相溶性が良くなく、合わせガラスにした

場合の耐貫通性確保に必要な可塑剤の添加が難しい。

第2の本発明の合わせガラス用中間膜は、少なくとも1層が、ポリビニルアセタール樹脂が熱線カット機能を有する金属酸化物微粒子を含有していることが好ましい。これにより、合わせガラス用中間膜に遮熱性を付与することができる。

5 上記金属酸化物微粒子としては特に限定されず、例えば、錫ドープ酸化インジウム（ITO）、アンチモンドープ酸化錫（ATO）、アルミニウムドープ酸化亜鉛（AZO）等が挙げられる。これら金属酸化物微粒子の含有量は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、0.13～3.0重量部であることが好ましい。0.13重量部未満であると、赤外線カット効果が出にくくなること  
10 があり、3.0重量部を超えると、可視光線の透過率が低下することがある。

第1及び第2の本発明の合わせガラス用中間膜は、更に、ポリエステルフィルムが積層されていることが好ましい。ポリエステルフィルムと積層することにより、中間膜に強度が付与されるため、高強度型でかつ遮音性が付与された合わせガラスが提供できる。また、熱線反射機能を有する金属膜が蒸着等されているポ  
15 リエステルフィルムとの積層では、熱線反射機能型かつ遮音性の付与された合わせガラスが提供できる。

第1及び第2の本発明の合わせガラス用中間膜が、更に、ポリエステルフィルムを積層している態様としては、例えば、ポリビニルアセタール樹脂膜/ポリエステルフィルム/ポリビニルアセタール樹脂膜、ポリビニルアセタール樹脂膜/  
20 ポリエステルフィルム/ポリビニルアセタール樹脂膜等が挙げられる。

第1及び第2の本発明の合わせガラス用中間膜には、必要に応じて紫外線吸収剤、光安定剤、酸化防止剤、接着力調整剤、界面活性剤、着色剤等の、合わせガラス用中間膜に一般的に用いられている各種の添加剤の1種又は2種以上が配合されていてもよい。

25 上記紫外線吸収剤としては特に限定されず、例えば、チバガイギー社製の商品名「チヌピンP」、「チヌピン320」、「チヌピン326」、「チヌピン328」等のベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤が挙げられる。これらは単独で用いられてもよく、2種類以上が併用されてもよい。

上記光安定剤としては特に限定されず、例えば旭電化工業社製の商品名「アデ

カスタブLA-57」等のヒンダードアミン系安定剤等が挙げられる。これらは単独で用いられてもよく、2種類以上が併用されてもよい。

上記酸化防止剤としては特に限定されず、例えば住友化学工業社製の商品名「スミライザーBHT」、チバガイギー社製の商品名「イルガノックス1010」等のフェノール系酸化防止剤等が挙げられる。これらは単独で用いられてもよく、2種類以上が併用されてもよい。

第1及び第2の本発明の合わせガラス用中間膜の積層方法の一例を説明する。

例えば、下記の種類の樹脂膜(X)及び(Y)を用意する。

樹脂膜(X)・・・ポリビニルアセタール樹脂(X1)100重量部と、可塑剤(X2)40重量部とを含むもの。

樹脂膜(Y)・・・ポリビニルアセタール樹脂(Y1)100重量部と、可塑剤(Y2)50重量部とを含むもの。

上記樹脂膜(X)／樹脂膜(Y)のように積層した態様、樹脂膜(X)／樹脂膜(Y)／樹脂膜(X)のように3層を積層した態様等が挙げられる。更に、樹脂膜(X)／樹脂膜(Y)／樹脂膜(X)／樹脂膜(X)の4層構造としてもよい。

これらの積層方法は任意であり、樹脂膜(X)と樹脂膜(Y)とを構成する、ポリビニルアセタール樹脂(X1)及びポリビニルアセタール樹脂(Y1)は同種であってもよく、異種であってもよい。同様に、可塑剤(X2)及び可塑剤(Y2)についても、同一であってもよく、異なってもよい。

また、樹脂膜(X)と樹脂膜(Y)との積層構成において、樹脂膜(X)／樹脂膜(Y)の片側にポリエステルフィルムを積層させることも可能である。例えば、樹脂膜(X)／樹脂膜(Y)／ポリエステルフィルム／樹脂膜(X)、樹脂膜(X)／樹脂膜(Y)／樹脂膜(X)／ポリエステルフィルム／樹脂膜(X)等の構成である。

第1及び第2の本発明の合わせガラス用中間膜の製膜方法としては特に限定されず、例えば、各層をそれぞれ別々に成形したのちこれらをガラス板の間に積層させる方法、各層を多層成形機を用いて一体成形させる方法等が挙げられる。

第1及び第2の本発明の合わせガラス用中間膜の膜全体の厚みとしては、通常

の合わせガラス用中間膜としての厚みである0.3～1.6mmが好ましい。合わせガラス用中間膜は、厚みが大きい方がより遮音性能に優れるが、合わせガラスとして必要な耐貫通性の点を考慮して厚みを決めるのが好ましく、実用上は上記した厚みの範囲が好適である。

5 第1及び第2の本発明の合わせガラス用中間膜は、例えば、上記ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを混練し、混練して得られた混練物を、プレス成形機、カレンダーロール、押し出し機等でシート状に成形することにより製造できる。

また、少なくとも一対のガラス間に、第1及び第2の本発明の合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させることにより、合わせガラスを製造することができる。第1及び第2の本発明の合わせガラス用中間膜を用いてなる合わせガラスもまた、本発明の1つである。

10 上記ガラス板としては特に限定されず、例えば、フロート板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入り板ガラス、線入り板ガラス、熱線吸収板ガラス、着色された板ガラス等の各種無機ガラス板又は有機ガラス板等が挙げられる。これらは単独で用いられてもよく、2種類以上併用されてもよい。

本発明の合わせガラス用中間膜は、ガラス以外の剛性の高い透明体で挟着されてもよい。上記透明体としては、例えば、ポリカーボネート樹脂よりなるもの等が挙げられる。このような構成体もまた本発明の1つである。

20 本発明の合わせガラスの製造方法としては特に限定されず、既知の方法を用いることができ、例えば、本発明の合わせガラス用中間膜をその両側からガラス板で挟み込み、熱圧プレスにより合わせガラスを製造する方法等が挙げられる。

本発明の合わせガラス用中間膜及び合わせガラスは、上述のような構成を有することにより、合わせガラスに必要な基本性能を損なわず、合わせガラス用中間膜の成形性及び取扱性を損なうこともなく、広い温度領域において優れた遮音性能を有し、かつ、低温側の遮音性能が向上しても、機械的強度は低下しない。

25 第2の本発明による合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの用途としては特に限定されないが、特に遮音性能を付与させる目的で、車両用（特に自動車のフロント部、サイド部、リア部）及び建築用に好適に用いることができる。

発明を実施するための最良の形態

以下に実施例を挙げて本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例のみに限定されるものではない。

#### 5 <実施例 1>

あらかじめ、平均重合度が2000のPVAに、平均重合度が3500のPVAを50重量%混合した。この混合されたPVAを用いて、ブチラール化度が63.6mol%、アセチル基量が14.3mol%のポリビニルブチラール樹脂を合成した。得られたポリビニルブチラール樹脂10.0重量部に対し可塑剤として  
10 トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)を60重量部混合し、これをミキシングロールで十分に熔融混練した後、プレス成形機で150℃、30分間プレス成形して厚み0.7mmの樹脂膜を得た。得られた樹脂膜を合わせガラス用中間膜として用い、下記の方法にて合わせガラスを作製した。

合わせガラス用中間膜を一辺が300mmである正方形の厚み3mmのフロート板ガラス二枚で両側から挟着し、この未圧着挟着体をゴムバッグへ入れ、2.7kPaの真空度で20分間脱気した後、脱気状態のまま90℃のオープンに移し、この温度を30分間保持した。こうして真空プレスにより仮接着した挟着体を、次いでオートクレーブ中で圧力1.2MPa、温度135℃で熱圧着し、透明な合わせガラスを作製した。

20

#### <実施例 2>

あらかじめ、平均重合度が2000のPVAに平均重合度が3500のPVAを30重量%混合した。この混合されたPVAより、ブチラール化度が63.3mol%、アセチル基量が14.3mol%のポリビニルブチラール樹脂を合成した。この樹脂を用いて、実施例1と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを作製した。

25

#### <実施例 3>

あらかじめ、平均重合度が2400のPVAに平均重合度が4200のPVA

を30重量%混合した。この混合されたPVAより、ブチラール化度が63.3 mol%、アセチル基量が14.4 mol%のポリビニルブチラール樹脂を合成した。この樹脂を用いて、実施例1と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを作製した。

5

#### <比較例1>

平均重合度が2000のPVAより、ブチラール化度が63.7 mol%、アセチル基量が14.3 mol%のポリビニルブチラール樹脂を合成した。この樹脂を用いて、実施例1と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを作製した。

10

#### <比較例2>

平均重合度が3500のPVAより、ブチラール化度が63.9 mol%、アセチル基量が14.4 mol%のポリビニルブチラール樹脂を合成した。この樹脂を用いて、実施例1と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを作製した。

15

#### <比較例3>

あらかじめ、平均重合度が2000のPVAに平均重合度が2800のPVAを30重量%混合した。この混合されたPVAより、ブチラール化度が64.1 mol%、アセチル基量が14.4 mol%のポリビニルブチラール樹脂を合成した。この樹脂を用いて、実施例1と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを作製した。

20

#### <比較例4>

あらかじめ、平均重合度が2800のPVAに平均重合度が3500のPVAを30重量%混合した。この混合されたPVAより、ブチラール化度が64.4 mol%、アセチル基量が14.3 mol%のポリビニルブチラール樹脂を合成した。この樹脂を用いて、実施例1と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせ

25

せガラスを作製した。

#### <比較例 5>

5 あらかじめ、平均重合度が2000のPVAに平均重合度が3500のPVAを50重量%混合した。この混合されたPVAより、ブチラール化度が68.5 mol%、アセチル基量が0.9 mol%のポリビニルブチラール樹脂を合成した。この樹脂を用いて、実施例1と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを作製した。

#### 10 <比較例 6>

あらかじめ、平均重合度が500のPVAに平均重合度が2000のPVAを50重量%混合した。この混合されたPVAより、ブチラール化度が63.5 mol%、アセチル基量が14.4 mol%のポリビニルブチラール樹脂を合成した。この樹脂を用いて、実施例1と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを作製した。

実施例1～3及び比較例1～6で作製した合わせガラス用中間膜及び合わせガラスに対して、下記の方法で膜物性及び遮音性能を評価した。結果を表1に示した。

20

#### (1) 合わせガラス用中間膜の膜物性

作製した合わせガラス用中間膜の110℃フロー粘度をフローテスター（島津社製、フローテスターCFT500）にて測定し、評価を行った。

25 なお、表1中、フロー粘度が大きく膜物性が良好であるものを○、フロー粘度が小さく、膜物性が良好でないものを×と記載した。

#### (2) 合わせガラスの遮音性能

所定温度において合わせガラスをダンピング試験用の振動発生機（振研社製、加振機 G21-005D）により加振し、そこから得られる振動特性を機械イ

ンピーダンスアンプ（リオン社製、XG-81）にて増幅し、振動スペクトルを  
FFTアナライザー（横河ヒューレットパッカー社製、FFTスペクトラムアナ  
ライザー HP-3582AA）にて解析した。こうして得られた損失係数とガ  
ラスとの共振周波数の比とから損失係数を算出した。この結果に基づき、周波数  
5 2000Hz 近辺における極小の透過損失をもってTL値とした。測定は、0～  
+30℃の間、10℃間隔にて行った。

### （3）成形性・その他

合成した樹脂を合わせガラス用中間膜に成形する際の成形性、及び、その合  
10 せガラス用中間膜を用いて合わせガラスを作製する際の、板ずれ、発泡等の有無  
について評価した。

なお、表1中の記載については、以下のとおりである。

- ：成形性が良好で、合わせガラス作製時に板ずれ、発泡等がほとんどない
- △：成形性がやや悪く、合わせガラス作製時に板ずれ、発泡等がみられる
- 15 ×：成形性が悪く、合わせガラス作製時に板ずれ、発泡等がみられる



表1

	ポリビニルアセタール樹脂				遮音性能 TL値(dB)				フロ-粘度 poise	成形性 その他
	PVAの重合度 (混合比)	ブチラール化度 mol%	アセチル基量 mol%		0°C	10°C	20°C	30°C		
実施例	1	2000(50重量%) 3500(50重量%)	63.6	14.3	36	37	35	33	1.85×10 <sup>5</sup> ○	○
	2	2000(70重量%) 3500(30重量%)	63.3	14.3	37	37	35	33	1.03×10 <sup>5</sup> ○	○
	3	2400(70重量%) 4200(30重量%)	63.3	14.4	36	36	34	33	1.99×10 <sup>6</sup> ○	○
比較例	1	2000 (100重量%)	63.7	14.3	36	37	35	34	3.75×10 <sup>4</sup> x	○
	2	3500 (100重量%)	63.9	14.4	36	36	34	33	1.35×10 <sup>6</sup> ○	x
	3	2000(70重量%) 2800(30重量%)	64.1	14.4	37	36	35	33	5.33×10 <sup>4</sup> x	○
	4	2800(70重量%) 3500(30重量%)	64.4	14.3	36	36	34	33	6.26×10 <sup>6</sup> ○	△
	5	2000(50重量%) 3500(50重量%)	68.5	0.9	22	23	28	32	1.97×10 <sup>6</sup> ○	○
	6	500(50重量%) 2000(50重量%)	63.5	14.4	36	35	34	33	5.46×10 <sup>3</sup> x	○

5  
10  
15  
20  
25

表1より、実施例1～3で作製した合わせガラス用中間膜は、膜物性が良好であり、かつ、TL値の低下が小さく、広い温度領域において優れた遮音性能を有するものであった。一方、比較例1～6で得られた合わせガラス用中間膜は、遮音性能及び膜物性の両方に優れるものではなかった。

5

#### <実施例4>

##### (層(A)の作製)

ポリビニルブチラール樹脂(ブチラール化度=68.9mol%、アセチル化度=0.9mol%、以下PVB)に可塑剤としてトリエチレングリコールジ-  
10 2-エチルヘキサノエート(3GO)を39重量部数(樹脂100重量部に対し)添加した。

これら混合物をミキシングロールで十分に混練し、混練物の所定量をプレス成形機により150℃で30分間保持した。こうして厚み0.2mmの層(A)を作製した。

15

##### (膜(B)の作製)

層(B)に、あらかじめ平均重合度が1700のポリビニルアルコール(以下、PVA)を用いて、ブチラール化度が64.5mol%、アセチル化度が14.3mol%のPVB樹脂を合成した。得られたPVB樹脂100重量部に対し、  
20 可塑剤として3GOを60重量部添加した。これら混合物をミキシングロールで十分に混練し、混練物の所定量をプレス成形機により150℃で30分間保持した。こうして厚み0.4mmの層(B)を作製した。また、これら樹脂と可塑剤の曇り点とを測定した。

##### (積層膜、及びそれを用いた合わせガラスの作製)

上記のように得られた層(A)及び層(B)を、積層構成が層(A)/層(B)/層(A)になるように重ねて、3層中間膜を得た。得られた積層膜から20mm各を切り取り、動的粘弾性用とした。

次いで、中間膜をそれぞれ1辺が300mmの正方形で、厚み3mmのフロー

- トガラス2枚で両側からサンドイッチし、この未圧着サンドイッチ体をゴムバッグへ入れ、2.7kPaの真空度で20分間脱気した後、脱気状態のまま90℃のオープンに移し、この温度を30分間保持した。こうして真空プレスにより仮接着したサンドイッチ体を、次いでオートクレーブ中で圧力12kg/cm<sup>2</sup>、
- 5 温度135℃で熱圧着し、透明な合わせガラスを作製した。

#### <実施例5>

層(A)、(B)の作製に、可塑剤としてトリエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート(3G7)を用いた。

- 10 層(B)の作製に平均重合度が2000のPVAを用いたポリビニルブチラール樹脂を使用し、3G7の添加部数を58重量部とした。これら以外は実施例4と同様にして合わせガラスを作製した。

#### <実施例6>

- 15 層(A)、(B)の作製に、可塑剤としてテトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(4G0)を用いた。層(A)の作製の際、ポリビニルブチラール樹脂への4G0添加部数を40重量部とした。これら以外は実施例4と同様にして合わせガラスを作製した。

#### 20 <実施例7>

- 層(A)、(B)の作製に、可塑剤としてテトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート(4G7)を用いた。層(A)の作製の際、ポリビニルブチラール樹脂への4G7添加部数を40重量部とした。一方、層(B)の作製に平均重合度が2000のPVAを用いたポリビニルブチラール樹脂を使用し、4G7の
- 25 添加部数を55重量部とした。これら以外は実施例4と同様にして合わせガラスを作製した。

#### <実施例8>

層(A)、(B)の厚みを0.4mmとし、積層構成を層(A)/層(B)の

2層とした。このこと以外は実施例4と同様にして合わせガラスを作製した。

#### <実施例9>

層(A)の厚みを0.2mm、層(B)の厚みを0.1mmとし、積層構成を  
5 層(A)/層(B)/層(A)/層(B)/層(A)の5層とした。このこと以外  
は実施例4と同様にして合わせガラスを作製した。

#### <比較例7>

層(A)、(B)の作製に可塑剤として3GHを使用したこと以外は実施例4  
10 と同様にして合わせガラスを作製した。

#### <比較例8>

層(B)の作製に、可塑剤として3GHを用い、その添加部数を40重量部と  
した  
15 こと以外は、実施例4と同様にして合わせガラスを作製した。

実施例4~9及び比較例7~8で作製した合わせガラス用中間膜及び合わせガ  
ラスに対して、下記の方法で性能試験を行った。結果を表2に示した。

#### (遮音性試験)

20 得られた合わせガラスから、幅20mm、長さ150mmの短冊状に切り取り、  
これを遮音性能の測定用試験片とした。遮音性能は、実施例1と同様にして測定  
した。

#### (動的粘弾性の測定)

25 測定装置には、レオメトリックス社製、固体粘弾性測定装置RSA-IIを用い  
た。積層体を10×16cmの矩形にサンプリングし、これに測定周波数=10  
Hzの正弦歪みをせん断方向で、歪み量0.1%で印加した。

測定温度範囲は-20℃~+100℃、昇温速度=3℃/min.にて測定し  
た。

これら条件のもと、動的粘弾性特性として、貯蔵弾性率 ( $G'$ )、損失弾性率 ( $G''$ ) と、これらの比である損失正接 ( $\tan \delta$ ) とを測定した。次に、得られた  $\tan \delta$  の温度曲線からその最大値が示す温度を求め、これをガラス転移温度とした。

5

#### (耐熱性試験)

90℃に設定された恒温槽に、得られた合わせガラスを4週間放置後、ガラスエッジからの剥離 (ガラスと膜) 状態を観察した。評価は、エッジからの剥離量を読みとる方法で行った。剥離量が小さい程、耐熱性が優れることを表す。

10

#### (耐湿性試験)

合わせガラスを、50℃、95%RHに設定された恒温恒湿槽に4週間放置する。4週間後に合わせガラスを取り出し、エッジ部から白化した距離を読みとった。白化距離が短い程、その合わせガラスの耐湿性能は優れていることを表す。

15

表 2

	層(A)				層(B)				曇り点	tan δ 最低温側	積層 構成	耐熱 剥離 (mm)	耐湿性 白化 (mm)	合わせガラス評価				
	樹脂		可塑剤		樹脂		可塑剤							遮音性能	TL値(dB)			
	Bu化度 (mol%)	種類	重量部	種類	Bu化度 (mol%)	Ac化度 (mol%)	重合度	種類						重量部	0°C	10°C	20°C	30°C
実施例4	68.9	3GO	39	3GO	64.5	14.3	1700	3GO	60	<20°C	5°C	A/B/A	0.0	0.5	33	36	35	33
実施例5	68.9	3G7	39	3G7	64.5	14.3	2000	3G7	58	30°C	9°C	A/B/A	0.0	0.5	32	35	36	33
実施例6	68.9	4GO	40	4GO	64.5	14.3	1700	4GO	60	<20°C	6°C	A/B/A	0.0	0.5	32	36	35	32
実施例7	68.9	4G7	40	4G7	577.5	14.3	2000	4G7	55	<20°C	10°C	A/B/A	0.0	0.5	33	35	35	33
実施例8	68.9	3GO	39	3GO	64.5	14.3	1700	3GO	60	<20°C	5°C	A/B	0.0	0.5	34	36	35	33
実施例9	68.9	3GO	39	3GO	64.5	14.3	1700	3GO	60	<20°C	5°C	A/B/A B/A	0.0	0.5	33	35	36	32
比較例7	68.9	3GH	39	3GH	64.5	14.3	1700	3GH	60	40°C	8°C	A/B/A	5.0	1.0	30	31	32	31
比較例8	68.9	3GO	39	3GH	64.5	14.3	1700	3GH	40	<20°C	37°C	A/B/A	0.0	0.5	15	19	25	31

5  
10  
15  
20  
25

### <実施例10>

#### (層(A)の作製)

ポリビニルブチラール樹脂(ブチラール化度=68.9mol%、アセチル化度=0.9mol%、以下PVB)に可塑剤としてトリエチレングリコールジエチルヘキサノエート(3GO)を39重量部数(樹脂100重量部に対し)添加した。

これら混合物をミキシングロールで十分に混練し、混練物の所定量をプレス成形機により150℃で30分間保持した。こうして厚み0.2mmの層(A)を作製した。

#### (膜(B)の作製)

あらかじめ平均重合度が2000のポリビニルアルコール(以下、PVA)100重量部に、平均重合度が3500のPVAを25重量部混合した。この混合されたPVAを用いて、ブチラール化度が64.5mol%、アセチル化度が14.3mol%のPVB樹脂を合成した。得られたPVB樹脂100重量部に対し、可塑剤として3GOを60重量部添加した。これら混合物をミキシングロールで十分に混練し、混練物の所定量をプレス成形機により150℃で30分間保持した。こうして厚み0.4mmの層(B)を作製した。また、これら樹脂と可塑剤の曇り点とを測定した。

#### (積層膜、及びそれを用いた合わせガラスの作製)

上記のように得られた層(A)及び層(B)を、積層構成が層(A)/層(B)/層(A)になるように重ねて、3層中間膜を得た。

次いで、中間膜をそれぞれ1辺が300mmの正方形で、厚み3mmのフロートガラス2枚で両側からサンドイッチし、この未圧着サンドイッチ体をゴムバッグへ入れ、2.7kPaの真空度で20分間脱気した後、脱気状態のまま90℃のオープンに移し、この温度を30分間保持した。こうして真空プレスにより仮接着したサンドイッチ体を、次いでオートクレーブ中で圧力12kg/cm<sup>2</sup>、温度135℃で熱圧着し、透明な合わせガラスを作製した。

### <実施例 1 1>

層 (A)、(B) の作製に、可塑剤としてトリエチレングリコールジ-n-ヘ  
プタノエート (3G7) を用い、層 (B) 作製時の添加部数を 58 重量部とした  
5 こと以外は実施例 10 と同様にして合わせガラスを作製した。

### <実施例 1 2>

平均重合度が 2000 の PVA 100 重量部に、平均重合度が 500 の PVA  
を 11 重量部混合した。この混合された PVA を用いて、ブチラール化度が 64.  
10 5 mol %、アセチル化度が 14.3 mol % の PVB 樹脂を合成した。この P  
VB 樹脂を用いて層 (B) を形成したこと以外は実施例 10 と同様にして合わせ  
ガラスを作製した。

### <実施例 1 3>

15 平均重合度が 1700 の PVA 100 重量部に、平均重合度が 3500 の PV  
A を 42 重量部混合した。この混合された PVA を用いて、ブチラール化度が 6  
4.5 mol %、アセチル化度が 14.3 mol % の PVB 樹脂を合成した。こ  
この PVB 樹脂を用いて層 (B) を形成したこと以外は実施例 10 と同様にして合  
わせガラスを作製した。

20

### <実施例 1 4>

層 (A) には、PVB 樹脂 (ブチラール化度 = 65.9 mol %、アセチル化  
度 = 0.9 mol %) に可塑剤として、テトラエチレングリコールジ-2-エチ  
ルヘキサノエート (4G0) を 40 重量部 (樹脂 100 重量部に対して) 添加し  
25 た樹脂膜を用いた。

層 (B) には、平均重合度が 2300 の PVA 100 重量部に、平均重合度が  
4000 の PVA を 42 重量部混合して得られた PVA を用いた PVB 樹脂 (ブ  
チラール化度 = 57.3 mol %、アセチル化度 = 20.0 mol %) に可塑剤  
として 4G0 を 60 重量部添加した樹脂膜を用いた。これら以外は、実施例 10



と同様にして合わせガラスを作製した。

#### <実施例 15>

層 (A) には、PVB樹脂 (ブチラール化度=68.9mol%、アセチル化度=0.9mol%) に可塑剤として、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート (4G7) を40重量部 (樹脂100重量部に対して) 添加した樹脂膜を用いた。

層 (B) には次の樹脂膜を用いた。平均重合度が1700のPVAから合成したPVB樹脂 (ブチラール化度=64.5mol%、アセチル化度=14.3mol%) 100重量部に対し、平均重合度が4000のPVAから合成したPVB樹脂を (ブチラール化度=64.5mol%、アセチル化度=14.3mol%) 42重量部混合した。この混合されたPVB樹脂に、可塑剤として4G7を60重量部 (樹脂100重量部に対し) 添加し、樹脂膜を作製した。

これら以外は、実施例10と同様にして合わせガラスを作製した。

15

#### <実施例 16>

層 (B) には次の樹脂膜を用いた。平均重合度が1200のPVAから合成したPVB樹脂 (ブチラール化度=64.5mol%、アセチル化度=14.3mol%) 100重量部に対し、平均重合度が3500のPVAから合成したPVB樹脂を (ブチラール化度=64.5mol%、アセチル化度=14.3mol%) 100重量部混合した。この混合されたPVB樹脂に、可塑剤として3G0を60重量部 (樹脂100重量部に対し) 添加し、樹脂膜を作製した。

これら以外は、実施例10と同様にして合わせガラスを作製した。

#### <比較例 9>

層 (A) 及び層 (B) に添加する可塑剤として3GHを用い、層 (B) に、平均重合度が1700のPVAから合成した、ブチラール化度が64.5mol%、アセチル化度が14.3mol%のPVB樹脂を用いたこと以外は、実施例10と同様にして合わせガラスを作製した。

25

<比較例 10>

層(A)及び層(B)に添加する可塑剤として3GHを用い、層(B)に、平均重合度が3500のPVAから合成した、ブチラール化度が64.5mol%、アセチル化度が14.3mol%のPVB樹脂を用いたこと以外は、実施例10と同様にして合わせガラスを作製した。

<比較例 11>

層(A)及び層(B)に添加する可塑剤としてDHAを用い、層(A)への可塑剤の添加部数を40重量部とし、層(B)に用いるPVB樹脂として、ブチラール化度が57.3mol%、アセチル化度が13.0mol%のPVB樹脂を用いたこと以外は実施例10と同様にして合わせガラスを作製した。

<比較例 12>

層(A)及び層(B)に添加する可塑剤として3GHを用い、層(B)に、平均重合度が1700のPVA100重量部に、平均重合度が1900のPVAを42重量部混合して得られたPVAを用いたこと以外は、実施例10と同様にして合わせガラスを作製した。

<比較例 13>

層(B)に、実施例14で使用了層(A)のPVB樹脂100重量部に対し、可塑剤として3GHを60重量部添加した樹脂膜を用いたこと以外は、実施例14と同様にして合わせガラスを作製し、各評価を行った。

実施例10~16及び比較例9~13で作製した合わせガラス用中間膜及び合わせガラスに対して、下記の方法で性能試験を行った。結果を表3に示した。

(遮音性試験)

得られた合わせガラスから、幅20mm、長さ150mmの短冊状に切り取り、

これを遮音性能の測定用試験片とした。遮音性能は、実施例1と同様の方法で測定した。

(動的粘弾性の測定)

- 5 実施例4と同様にして、 $\tan \delta$ を測定し、ガラス転移温度を求めた。

(高温下でのガラス板ずれ性)

- 10 得られた合わせガラスを垂直にし、一方のガラス板は固定し、他方のガラス板は垂直方向に自由に動けるよう支持した。この状態で80℃に設定された恒温槽に入れ、自由に動けるガラス板の垂直方向のずれ量を読みとった。評価は、恒温槽内で放置1週間後のずれ量を読みとった。この際、ずれ量が3mm以内であれば、良好と判断した。

(ベーク試験)

- 15 130℃に設定された恒温槽に、得られた合わせガラスを2時間放置後、合わせガラス周辺等の発泡状態を観察した。評価判断は、周辺エッジから15mm以内に発泡が生じたものは合格、それ以外は不合格とした。また、合格した中でも、発泡数が合計10個以内は特に優れていると判断した。

◎：特に優れている

- 20 ○：合格

×：不合格

表 3

	層(A)				層(B)						合わせガラス評価				遮音性能 TL値(dB)			
	樹脂		可塑剤		樹脂		可塑剤		曇り点	tan δ	最低温側	板スリ量		マーク	0°C	10°C	20°C	30°C
	Bu化度 (mol%)	種類	重量部	種類	Bu化度 (mol%)	Ac化度 (mol%)	重合度	種類				重量部	(mm)					
実施例10	68.9	3GO	39	3GO	64.5	14.3	2000 3500	3GO	60	<20°C	5°C	1.5	◎	33	36	35	33	
実施例11	68.9	3G7	39	3G7	64.5	14.3	2000 3500	3G7	58	30°C	9°C	1.5	◎	32	35	36	33	
実施例12	68.9	3GO	39	3GO	64.5	14.3	2000 500	3GO	60	<20°C	5°C	2	◎	32	36	35	32	
実施例13	68.9	3GO	39	3GO	64.5	14.3	1700 3500	3GO	60	<20°C	5°C	1.5	◎	33	35	35	33	
実施例14	65.9	4GO	40	4GO	57.3	20.0	2300 4000	4GO	60	<20°C	6°C	1	◎	32	35	34	33	
実施例15	68.9	4G7	40	4G7	64.5	14.3	1700 4000	4G7	60	30°C	10°C	1	◎	31	34	35	34	
実施例16	68.9	3GO	39	3GO	64.5	14.3	1200 3500	3GO	60	<20°C	5°C	1	◎	32	35	35	33	
比較例9	68.9	3GH	39	3GH	64.5	14.3	1700	3GH	60	40°C	8°C	5	○	30	31	32	31	
比較例10	68.9	3GH	39	3GH	64.5	14.3	3500*	3GH	60	40°C	8°C	0.5	◎	29	30	33	32	
比較例11	68.9	DHA	40	DHA	57.3	13	2000 3500	DHA	60	60°C	21°C	1.5	◎	22	25	32	33	
比較例12	68.9	3GH	39	3GH	64.5	14.3	1700 1900	3GH	60	40°C	8°C	5	○	30	30	31	32	
比較例13	65.9	3GH	40	3GH	65.9	0.9	2300 4000	3GH	60	110°C	37°C	1	◎	18	22	25	31	

\*成形性が非常に劣る

25 20 15 10 5

<実施例 17>

実施例 4 に記載の中間膜と、実施例 4 に記載の層 (A) を形成する樹脂可塑剤組成物を厚さ 0.4 mm にプレス成形した膜とを、ポリエチレンテレフタレートフィルム (PET) として、東レ社製、「ルミラー S-10」(厚み 0.05 mm) を介して積層した。

このようにして得られた中間膜を用いて、合わせガラスを作製した。

<比較例 14>

比較例 7 に記載の中間膜と、比較例 7 に記載の層 (A) を形成する樹脂可塑剤組成物を厚さ 0.44 mm にプレス成形した膜とを PET を介せず積層した。このようにして得られた中間膜を用いて、合わせガラスを作製した。

実施例 17 及び比較例 14 で作製した合わせガラス用中間膜及び合わせガラスに対して、実施例 1 と同様にして遮音性能の評価を行い、更に下記の方法で落球試験を行った。結果を表 4 に示した。

JIS R 3212 に準拠した手法にて評価を行ったが、鋼球を落下させる高さを 0.25 m 単位で変化させ、合わせガラスの数の 50% において鋼球の貫通が防げられる高さを求め、この時の鋼球とガラス板面との距離をもって「平均落球高さ」とした。従って、平均落球高さの数値が大きいほど、耐貫通性は優れていることを示している。

表 4

7	積層構成	合わせガラス評価 平均落球高さ (m)	遮音性能 TL値(dB)			
			0°C	10°C	20°C	30°C
実施例17	実施例4中間膜/ PET/実施例4、層(A)	6.5	31	34	35	34
比較例14	比較例7中間膜/ 比較例7、層(A)	5	29	30	30	32

<実施例18>

層(B)の作製において、ポリビニルブチラール樹脂100重量部に対し、可塑剤3GOを60重量部、更に金属酸化物微粒子としてITOを中間膜中の含有

量が1.4重量部となるように添加混合した。このこと以外は実施例4と同様にして、三層構成の樹脂膜を作製し、これを用いて合わせガラスを作製した。

#### <実施例19>

- 5 層(B)の作製において、更に、金属酸化物微粒子としてATOを用いたこと以外は実施例5と同様にして合わせガラスを作製した。

#### <比較例15>

- 10 比較例7に記載の三層積層構成を中間膜として用いた。合わせガラスを作製する際、フロートガラスの代わりにITOを蒸着した熱線反射型ガラスを用いた。このこと以外は、実施例14と同様にして合わせガラスを作製した。

- 15 実施例18、19及び比較例15において作製した合わせガラス用中間膜及び合わせガラスに対して、実施例1と同様にして遮音性能の評価を行い、実施例4と同様にして動的粘弾性の測定を行い、更に下記の方法で性能試験を行った。結果を表5に示した。

#### (光学特性)

- 20 分光光度計(島津製作所社製「UV3100」)を使用して、合わせガラスの340~1800nmの透過率を測定し、JIS Z 8722、JIS R 3106、及びJIS Z 8701に準拠して380~780nmの可視光透過率 $T_v$ 、340~1800nmの日射透過率 $T_s$ を評価した。

#### (電磁波透過性)

- 25 KEC法測定(電磁波シールド効果試験)に準拠して、10~2000MHzの範囲の反射損失値(dB)を、通常の板厚3mmのフロートガラス単板と比較して測定し、上記周波数の範囲での差の最大値を $\Delta dB_{max}$ として評価した。

表 5

	層(A)				層(B)				tan δ 最低温側 ピーク	合わせガラス評価				合わせガラス評価			
	樹脂		可塑剤		樹脂		可塑剤			電界	磁界	Ts	Tv	遮音性能		TL値(dB)	
	Bu化度 (mol%)	種類	重量部	種類	Bu化度 (mol%)	Ac化度 (mol%)	重量部	種類						0°C	10°C	20°C	30°C
実施例18	68.9	3GO	39	3GO	60	1700	3GO	60	ITO	5°C	78	78	33	33	35	33	
実施例19	68.9	3G7	39	3G7	58	2000	3G7	58	ATO	9°C	77	77	32	35	36	33	
比較例15	68.9	3GH	39	3GH	60	1700	3GH	60	コーティング ガラス	8°C	80	80	30	31	32	31	

Tv; 可視光透過率

Ts; 日射透過率

5

10

15

20

25



### 産業上の利用可能性

本発明の合わせガラス用中間膜は、上述のような構成からなるので、透明性、耐候性、衝撃エネルギー吸収性、ガラスとの接着性等の合わせガラスに必要な基本性能を損なうことなく、また、中間膜の成形性、及び、取扱性も損なうことなく、コインシデンス効果の緩和によってTL値の低下を防ぎ、かつ広い温度領域において優れた遮音性能を示し、適度な膜物性により合わせガラスとしたときの板ずれ、発泡を防止することができる。

## 請求の範囲

1. ポリビニルアセタール樹脂 (A) 及びポリビニルアセタール樹脂 (B) が混合されてなるポリビニルアセタール樹脂 (C)、並びに、可塑剤からなる合わせ  
5 ガラス用中間膜であって、  
前記ポリビニルアセタール樹脂 (A) は、平均重合度が1000~3000であり、  
前記ポリビニルアセタール樹脂 (B) は、平均重合度が3000~5000であり、  
10 前記ポリビニルアセタール樹脂 (A) と前記ポリビニルアセタール樹脂 (B) との平均重合度差は、1500以上であり、  
前記ポリビニルアセタール樹脂 (C) は、アセタール化度が60~85mol%、アセチル基量が8~30mol%、かつ、アセタール化度とアセチル基量との合計が75mol%以上であり、  
15 前記可塑剤100重量部に前記ポリビニルアセタール樹脂 (C) 8重量部を溶解させた溶液の曇り点は、50℃以下であることを特徴とする合わせガラス用中間膜。
2. ポリビニルアセタール樹脂、及び、トリエチレングリコールジ-2-エチル  
20 ヘキサノエート、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、トリエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエートからなる群より選ばれる少なくとも1種の可塑剤からなる膜を積層してなる合わせガラス用中間膜であって、動的粘弾性より得られる損失正接の温度依存性において、最も低温側の極大値が示す温度が30℃以下であることを特徴とする合わせガラス用中間膜。  
25
3. 少なくとも1層は、可塑剤100重量部にポリビニルアセタール樹脂8重量部を溶解させた溶液の曇り点が50℃以下であることを特徴とする請求の範囲第2項記載の合わせガラス用中間膜。

4. 少なくとも1層は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する可塑剤量が、他層よりも5重量部以上多いことを特徴とする請求の範囲第2又は3項記載の合わせガラス用中間膜。

5

5. 少なくとも1層は、ポリビニルアセタール樹脂が、平均重合度が1500以上であり、アセタール化度が60~85mol%、アセチル基量が8~30mol%、かつ、アセタール化度とアセチル基量との合計が75mol%以上であることを特徴とする請求の範囲第2、3又は4項記載の合わせガラス用中間膜。

10

6. 少なくとも1層は、ポリビニルアルコール樹脂(A)及びポリビニルアルコール樹脂(B)が混合されてなるポリビニルアルコール樹脂より得られるポリビニルアセタール樹脂(C)、並びに、可塑剤からなり、

15

前記ポリビニルアルコール樹脂(A)と前記ポリビニルアルコール樹脂(B)との平均重合度差は500以上であり、

前記ポリビニルアセタール樹脂(C)は、アセタール化度が60~85mol%、アセチル基量が8~30mol%、かつ、アセタール化度とアセチル基量との合計が75mol%以上である

ことを特徴とする請求の範囲第2、3、4又は5項記載の合わせガラス用中間膜。

20

7. 少なくとも1層が、ポリビニルアセタール樹脂(D)及びポリビニルアセタール樹脂(E)が混合されてなるポリビニルアセタール樹脂(F)、並びに、可塑剤からなり、

25

前記ポリビニルアセタール樹脂(D)とポリビニルアセタール樹脂(E)との平均重合度差は500以上であり、

前記ポリビニルアセタール樹脂(F)は、アセタール化度60~85mol%、アセチル基量が8~30mol%、かつ、アセタール化度とアセチル基量との合計が75mol%以上であることを特徴とする請求の範囲第2、3、4又は5項記載の合わせガラス用中間膜。

8. ポリビニルアルコール樹脂 (A) の平均重合度が500~3000であり、ポリビニルアルコール樹脂 (B) の平均重合度が3000~5000であることを特徴とする請求の範囲第6項記載の合わせガラス用中間膜。

5

9. ポリビニルアセタール樹脂 (D) の平均重合度が500~3000であり、ポリビニルアセタール樹脂 (E) の平均重合度が3000~5000であることを特徴とする請求の範囲第7項記載の合わせガラス用中間膜。

10 10. 少なくとも1層は、ポリビニルアセタール樹脂が熱線カット機能を有する金属酸化物微粒子を含有していることを特徴とする請求の範囲第2、3、4、5、6、7、8又は9項記載の合わせガラス用中間膜。

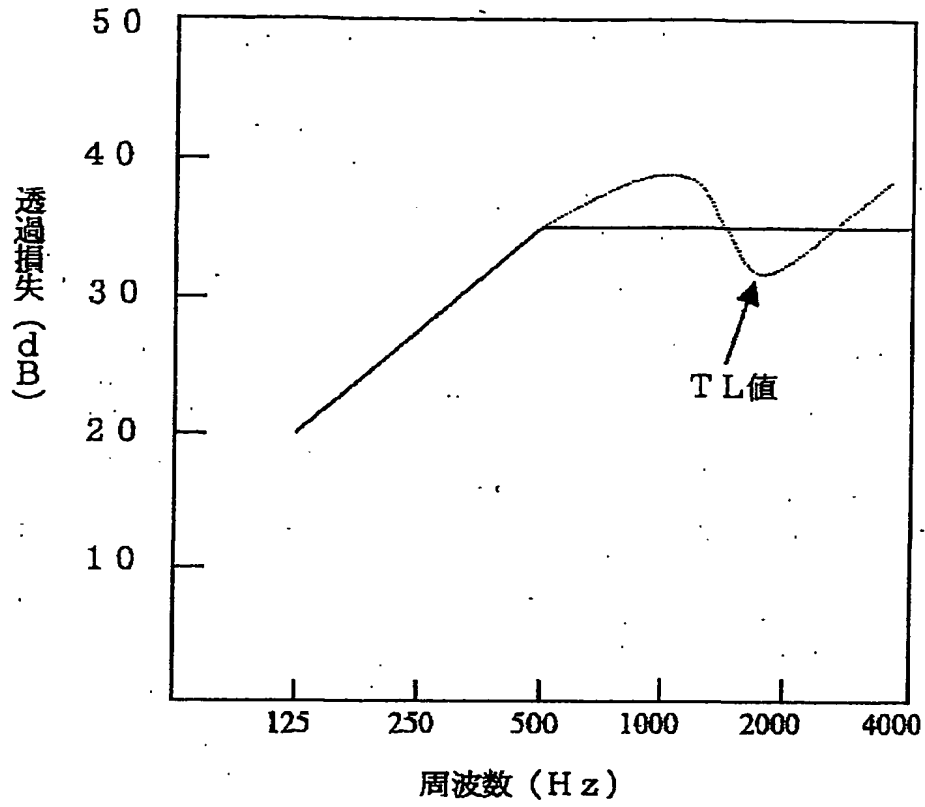
15 11. 更に、ポリエステルフィルムが積層されてなることを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8、9又は10項記載の合わせガラス用中間膜。

20 12. ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルブチラール樹脂であることを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8、9、10又は11項記載の合わせガラス用中間膜。

13. 少なくとも一対のガラス間に請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11又は12項記載の合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させてなることを特徴とする合わせガラス。

25

図 1



**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP01/01620

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
Int.Cl<sup>7</sup> C03C27/12, C08L29/14, C08K5/103

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> C03C27/12, C08L29/14, C08K5/103

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 10-25390, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 27 January, 1998 (27.01.98), Claims (Family: none)	1-13
Y	JP, 10-1335, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 06 January, 1998 (06.01.98), Par. Nos. [0078], [0088], [0109] (Family: none)	1,5-13
Y	JP, 11-322378, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 24 November, 1999 (24.11.99), Par. No. [0038] (Family: none)	2-13
Y	JP, 6-80446, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 22 March, 1994 (22.03.94), Claims; Par. No. [0012] (Family: none)	1,3-13
Y	JP, 5-330864, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 14 December, 1993 (14.12.93), Claims; Par. No. [0023] (Family: none)	2-13

Further documents are listed in the continuation of Box C.  See patent family annex.

* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family
-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------	------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------

Date of the actual completion of the international search  
19 June, 2001 (19.06.01)

Date of mailing of the international search report  
17 July, 2001 (17 07.01)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/01620

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
PY	JP, 2000-272936, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 03 October, 2000 (03.10.00), Claims (Family: none)	2-13
Y	JP, 10-36146, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 10 February, 1998 (10.02.98), Claims; Par. No. [0046] (Family: none)	4-13
Y	JP, 10-316454, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 02 December, 1998 (02.12.98), Par. Nos. [0029], [0030] (Family: none)	10-13
Y	US, 5567529, A (E. I. Du Pont de Nemours and Company), 22 October, 1996 (22.10.96), Claims & JP, 7-503414, A Claims & WO, 93/10973, A1	11-13

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. C03C27/12, C08L29/14, C08K5/103

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. C03C27/12, C08L29/14, C08K5/103

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2001年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2001年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2001年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 10-25390, A (積水化学工業株式会社), 27. 1月. 1998 (27. 01. 98), 特許請求の範囲 (ファミリーなし).	1-13
Y	JP, 10-1335, A (積水化学工業株式会社), 6: 1月. 1998 (06. 01. 98), 【0078】, 【0088】, 【0109】 (ファミリーなし)	1, 5-13
Y	JP, 11-322378, A (積水化学工業株式会社), 24. 11月. 1999 (24. 11. 99), 【0038】 (ファミリーなし)	2-13
Y	JP, 6-80446, A (積水化学工業株式会社), 22. 3	1, 3-13

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

\* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 19. 06. 01

国際調査報告の発送日

17.07.01

国際調査機関の名称及びあて先  
 日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)  
 前田 仁志



4T 9157

電話番号 03-3581-1101 内線 3465



C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	月. 1994 (22. 03. 94) , 特許請求の範囲, 【001 2】 (ファミリーなし)	
Y	JP, 5-330864, A (積水化学工業株式会社) , 14. 1 2月. 1993 (14. 12. 93) , 特許請求の範囲, 【002 3】 (ファミリーなし)	2-13
PY	JP, 2000-272936, A (積水化学工業株式会社) , 3. 10月. 2000 (03. 10. 00) , 特許請求の範囲 (フ ァミリーなし)	2-13
Y	JP, 10-36146, A (積水化学工業株式会社) , 10. 2 月. 1998 (10. 02. 98) , 特許請求の範囲, 【004 6】 (ファミリーなし)	4-13
Y	JP, 10-316454, A (積水化学工業株式会社) , 2. 1 2月. 1998 (02. 12. 98) , 【0029】 , 【003 0】 (ファミリーなし)	10-13
Y	US, 5567529, A (E. I. Du Pont de Nemours and Compa ny) , 22. 10月. 1996 (22. 10. 96) , 特許請求の 範囲&JP, 7-503414, A, 特許請求の範囲&WO, 93 /10973, A1	11-13